

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
5. Dezember 2002 (05.12.2002)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 02/096964 A3

(51) Internationale Patentklassifikation: C08F 10/10,
4/00, 2/01, 4/06, 4/12, 4/16, 10/08, 2/06

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP02/05731

(22) Internationales Anmeldedatum:
24. Mai 2002 (24.05.2002)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
101 25 583.7 25. Mai 2001 (25.05.2001) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme
von US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];
67056 Ludwigshafen (DE).

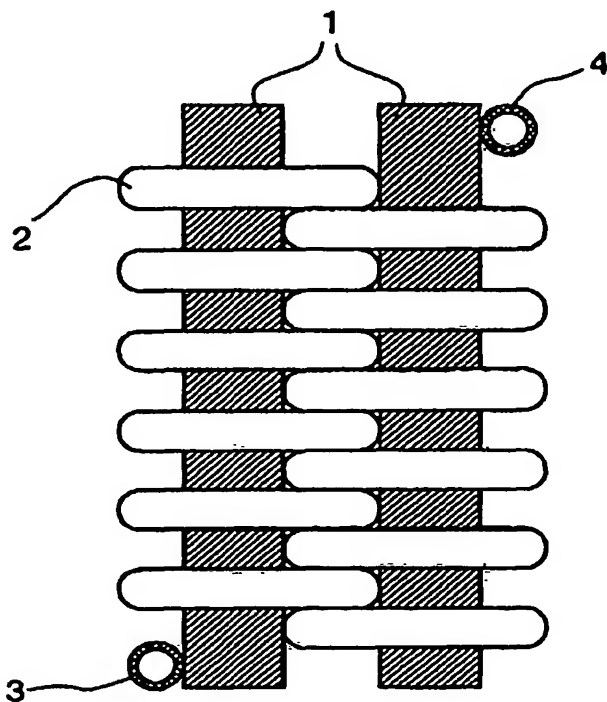
(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): HÜFFER, Stephan
[DE/DE]; Luitpoldstr. 19, 67063 Ludwigshafen (DE).
RATH, Hans, Peter [DE/DE]; Friedhofstr. 7, 67269 Grün-
stadt (DE). LANG, Gabriele [DE/DE]; Eichendorffstr.
41, 68167 Mannheim (DE). KREMESKÖTTER, Jens
[DE/DE]; B 6.10, 68159 Mannheim (DE). STÖCKEL-
MANN, Elmar [DE/DE]; Westring 54, 67269 Grünstadt
(DE).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING HOMOPOLYMERS AND COPOLYMERS OF ISOBUTENE

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON HOMO- UND COPOLYMEREN DES ISOBUTENS



(57) Abstract: The invention relates to a method for producing homopolymers and copolymers of isobutene by the continuous cationic polymerization of isobutene or mixtures of isobutene with ethylenically unsaturated comonomers in the presence of an initiator system comprising: i) a Lewis acid selected among covalent metal-halogen compounds and covalent semimetal-halogen compounds; ii) at least one aprotic organic compound (I) having at least one functional group (FG) which, under polymerization conditions, forms a carbocation or a cationogenic complex with the Lewis acid, in an organic solvent that is inert to the Lewis acid. The inventive method is characterized in that the polymerization is carried out in a tubular continuous flow reactor that has a number of bends with an alternating bending direction.

(57) Zusammenfassung: Verfahren zur Herstellung von Homo- und Copolymeren des Isobutens durch kontinuierliche kationische Polymerisation von Isobuten oder Mischungen von Isobuten mit ethylenisch ungesättigten Comonomeren in Gegenwart eines Initiatorsystems umfassend: i) eine Lewis-Säure, ausgewählt unter kovalenten Metall-Halogen-Verbindungen und kovalenten Halbmetail-Halogen-Verbindungen, ii) wenigstens eine aprotische organische Verbindung I mit wenigstens einer funktionellen Gruppe FG, die unter Polymerisationsbedingungen mit der Lewis-säure ein Carbokation oder einen kationogenen Komplex bildet in einem gegenüber der Lewis-säure inerten

organischen Lösungsmittel, dadurch gekennzeichnet, dass man die Polymerisation in einem rohrförmigen Durchflussreaktor durchführt, der mehrere Krümmungen mit alternierender Krümmungsrichtung aufweist



WO 02/096964 A3



(74) **Anwälte:** KINZEBACH, Werner usw.; Reitstötter, Kinzebach & Partner, Sternwartstr. 4, 81679 München (DE).

(81) **Bestimmungsstaaten (national):** AB, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,

TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

(88) **Veröffentlichungsdatum des internationalen**

Recherchenberichts: 18. September 2003

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 02/05731

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08F10/10 C08F4/00 C08F2/01 C08F4/06 C08F4/12
C08F4/16 C08F10/08 C08F2/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08F

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 713 883 A (KANEKAFUCHI CHEMICAL IND) 29 May 1996 (1996-05-29) cited in the application the whole document	1-19
A	DE 196 34 450 A (BASF AG) 5 March 1998 (1998-03-05) cited in the application the whole document	1-19
A	EP 0 273 627 A (EXXON CHEMICAL PATENTS INC) 6 July 1988 (1988-07-06) the whole document	1-19
A	US 5 962 604 A (RATH HANS PETER) 5 October 1999 (1999-10-05) the whole document	1-19

☐

Further documents are listed in the continuation of box C.

☒

Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

11 March 2003

Date of mailing of the international search report

18/03/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Balmer, J-P

BEST AVAILABLE COPY

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 02/05731

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0713883	A	29-05-1996	DE 69513623 D1 DE 69513623 T2 EP 0713883 A1 BE 1008739 A3 JP 8053514 A WO 9533774 A1 US 5527870 A	05-01-2000 13-07-2000 29-05-1996 02-07-1996 27-02-1996 14-12-1995 18-06-1996
DE 19634450	A	05-03-1998	DE 19634450 A1 AU 4207597 A BR 9711230 A CN 1228717 A DE 59702114 D1 WO 9808602 A1 EP 0944431 A1 JP 2000516851 T US 6399031 B1	05-03-1998 19-03-1998 17-08-1999 15-09-1999 07-09-2000 05-03-1998 29-09-1999 19-12-2000 04-06-2002
EP 0273627	A	06-07-1988	BR 8706747 A CA 1283997 A1 DE 3750126 D1 DE 3750126 T2 EP 0273627 A2 JP 2610461 B2 JP 63213505 A KR 9508511 B1 US 4982045 A	19-07-1988 07-05-1991 28-07-1994 06-10-1994 06-07-1988 14-05-1997 06-09-1988 31-07-1995 01-01-1991
US 5962604	A	05-10-1999	DE 19520078 A1 AU 702804 B2 AU 6004896 A BR 9609425 A CA 2217848 A1 CZ 9703571 A3 DE 59603014 D1 WO 9640808 A1 EP 0830397 A1 ES 2137701 T3 HU 9801818 A2 JP 11506492 T NO 975702 A	12-12-1996 04-03-1999 30-12-1996 25-05-1999 19-12-1996 13-05-1998 14-10-1999 19-12-1996 25-03-1998 16-12-1999 30-11-1998 08-06-1999 05-12-1997

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 02/05731

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C08F10/10 C08F4/00 C08F2/01 C08F4/06 C08F4/12
C08F4/16 C08F10/08 C08F2/06

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08F

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EP0-Internal

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 713 883 A (KANEGAFUCHI CHEMICAL IND) 29. Mai 1996 (1996-05-29) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1-19
A	DE 196 34 450 A (BASF AG) 5. März 1998 (1998-03-05) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1-19
A	EP 0 273 627 A (EXXON CHEMICAL PATENTS INC) 6. Juli 1988 (1988-07-06) das ganze Dokument	1-19
A	US 5 962 604 A (RATH HANS PETER) 5. Oktober 1999 (1999-10-05) das ganze Dokument	1-19

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

11. März 2003

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

18/03/2003

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Balmer, J-P

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 02/05731

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0713883 A	29-05-1996	DE 69513623 D1	05-01-2000
		DE 69513623 T2	13-07-2000
		EP 0713883 A1	29-05-1996
		BE 1008739 A3	02-07-1996
		JP 8053514 A	27-02-1996
		WO 9533774 A1	14-12-1995
		US 5527870 A	18-06-1996
DE 19634450 A	05-03-1998	DE 19634450 A1	05-03-1998
		AU 4207597 A	19-03-1998
		BR 9711230 A	17-08-1999
		CN 1228717 A	15-09-1999
		DE 59702114 D1	07-09-2000
		WO 9808602 A1	05-03-1998
		EP 0944431 A1	29-09-1999
		JP 2000516851 T	19-12-2000
		US 6399031 B1	04-06-2002
EP 0273627 A	06-07-1988	BR 8706747 A	19-07-1988
		CA 1283997 A1	07-05-1991
		DE 3750126 D1	28-07-1994
		DE 3750126 T2	06-10-1994
		EP 0273627 A2	06-07-1988
		JP 2610461 B2	14-05-1997
		JP 63213505 A	06-09-1988
		KR 9508511 B1	31-07-1995
		US 4982045 A	01-01-1991
US 5962604 A	05-10-1999	DE 19520078 A1	12-12-1996
		AU 702804 B2	04-03-1999
		AU 6004896 A	30-12-1996
		BR 9609425 A	25-05-1999
		CA 2217848 A1	19-12-1996
		CZ 9703571 A3	13-05-1998
		DE 59603014 D1	14-10-1999
		WO 9640808 A1	19-12-1996
		EP 0830397 A1	25-03-1998
		ES 2137701 T3	16-12-1999
		HU 9801818 A2	30-11-1998
		JP 11506492 T	08-06-1999
		NO 975702 A	05-12-1997